

(10) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2000-36310
(P2000-36310A)

(43) 公開日 平成12年2月2日(2000.2.2)

(51) Int.Cl.

H01M 8/02
8/12

識別記号

F I

H01M 8/02
8/12

ナート* (参考)

B 5H026

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全7頁)

(21) 出願番号

特願平10-203314

(22) 出願日

平成10年7月17日(1998.7.17)

(71) 出願人 000002902

三井造船株式会社
東京都中央区築地5丁目6番4号

(72) 発明者 西村 直之

岡山県玉野市玉3丁目1番1号 三井造船
株式会社玉野事業所内

(72) 発明者 下津 正輝

岡山県玉野市玉3丁目1番1号 三井造船
株式会社玉野事業所内

(74) 代理人 100070587

弁護士 川北 武長

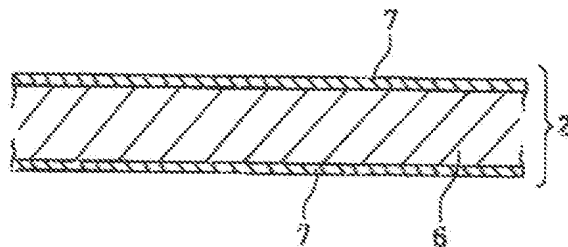
Fターム(参考) B3026 AA06 B303 B301 B304 B308
E302 E312 E313 H001 H005
H008

(54) 【発明の名称】 固体電解質型燃料電池のガスセパレータおよびその製造方法ならびにこれを用いた固体電解質型燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 耐熱衝撃性に優れ、生産性が向上する、安価な固体電解質型燃料電池のガスセパレータを提供する。

【解決手段】 電気絶縁性の酸化物板からなるセパレータ本体と、セパレータ本体を貫通して設けられた電気導電性の酸化物からなる電子流路とを有し、単セルを多数積層して固体電解質型燃料電池を形成する際に、単セル相互間に配置されて各単セルを電気的に接続するとともに、単セルへ供給される燃料ガスの流路と酸素含有ガスの流路とを仕切るガスセパレータにおいて、セパレータ本体が、多孔質の酸化物板(多孔質耐火煉瓦層6)と、この多孔質の酸化物板表面にコーティングされた緻密質の酸化物膜(緻密質コーティング層7)とを有すること。

6: 多孔質耐火煉瓦層
7: 緻密質コーティング層

【特許請求の範囲】

【請求項1】 電気絶縁性の酸化物膜からなるセパレータ本体と、該セパレータ本体を貫通して設けられた電気導電性の酸化物および/または金属を含む電子流路とを有し、単セルを多数積層して固体電解質型燃料電池を形成する際に、前記単セル相互間に配置されて各単セルを電気的に接続するとともに、前記単セルへ供給される燃料ガスの流路と酸素含有ガスの流路とを仕切るガスセパレータにおいて、前記セパレータ本体が、多孔質の酸化物膜と、該多孔質の酸化物膜表面にコーティングされた緻密質の酸化物膜とを有することを特徴とする、固体電解質型燃料電池のガスセパレータ。

【請求項2】 前記セパレータ本体を構成する多孔質の酸化物膜が、マグネシア (MgO) とマグネシアスピネル ($MgAl_2O_4$) を主成分とするものであり、該 MgO と $MgAl_2O_4$ の混合比が重量比で1:9~9:1であることを特徴とする請求項1に記載の、固体電解質型燃料電池のガスセパレータ。

【請求項3】 前記多孔質の酸化物膜にコーティングされた緻密質の酸化物膜が、 SiO_2 と CaO を主成分とするものであり、該 SiO_2 と CaO の混合比がモル比で1:0.5~2であることを特徴とする請求項1に記載の、固体電解質型燃料電池のガスセパレータ。

【請求項4】 前記多孔質の酸化物膜にコーティングされた緻密質の酸化物膜が、 SiO_2 に対してモル比で0~0.2の Al_2O_3 を含有することを特徴とする請求項3に記載の、固体電解質型燃料電池のガスセパレータ。

【請求項5】 請求項1~4の何れかに記載のガスセパレータを介して単セルを多数積層したことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

【請求項6】 粉末状のマグネシア (MgO) とマグネシアスピネル ($MgAl_2O_4$) とを混合し、助剤を加えて平板状に成形し、焼成した電気絶縁性のセパレータ本体に、該セパレータ本体の平板状を貫通するように電気導電性の酸化物および/または金属を含む電子流路を設ける、固体電解質型燃料電池のガスセパレータの製造方法において、前記粉末状のマグネシア (MgO) およびマグネシアスピネル ($MgAl_2O_4$) として、それぞれ粒径 $7.4\mu m$ 以下の粒子と該粒径 $7.4\mu m$ 以下の粒子を含む粒径 $1mm$ 以下の粒子の重量比が1:9~9:1となるように混合したものを用い、該粉末状の MgO と $MgAl_2O_4$ を重量比が1:9~9:1となるように混合し、該混合物に助剤を加えて平板状に成形し、 $1300\sim 1900^\circ C$ で焼成し、得られた焼成体表面に SiO_2 、 CaO および/または Al_2O_3 を含む混合スラリーを塗布し、 $1200\sim 1400^\circ C$ で熱処理して前記焼成体表面に緻密質の酸化物膜を形成してセパレータ本体とし、該セパレータ本体を貫通するように電気導電性酸化物および/または金属を含む電子流路を設けること

を特徴とする、固体電解質型燃料電池のガスセパレータの製造方法。

【請求項7】 前記混合スラリーにおける SiO_2 、 CaO および Al_2O_3 の混合比を、モル比で1:0.5~2:0~0.2とすることを特徴とする請求項6に記載の、固体電解質型燃料電池のガスセパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、固体電解質型燃料電池のガスセパレータおよびその製造方法ならびにこれを用いた固体電解質型燃料電池に係り、特に、耐熱衝撃性が向上する固体電解質型燃料電池のガスセパレータおよびその製造方法ならびにこれを用いた固体電解質型燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】 平板型の固体電解質型燃料電池は、一般に発電を行う平板状の単セルを、該単セルに供給される燃料ガスのガス流路と酸素含有ガスのガス流路を仕切るとともに、前記単セル相互を電気的に接続するガスセパレータを介して多数積層して形成される。

【0003】 図4は、固体電解質型燃料電池のガスセパレータおよび、該ガスセパレータを介して積層される単セルを示す説明図である。図において、ガスセパレータ41は、平板状のセパレータ本体42と、該セパレータ本体42の各辺にそれぞれ設けられた積層用枠体43およびガス流通用枠体44と、前記セパレータ本体42にあらかじめ設けられた電子流路用の貫通孔に蓋をするように結合された電子流路材45とから主として構成されており、ガスセパレータ41と単セル46の接合面には集電板47が配置される。

【0004】 このようなガスセパレータにおいて、セパレータ本体は、従来、例えば MgO と $MgAl_2O_4$ をそれぞれ、例えば粒径 $1\sim 50\mu m$ に粉碎し、例えば重量比が45:55となるように混合し、助剤として、例えば CaO を0.3wt%添加し、これを、例えばドクターブレード法で成形し、例えば $1200\sim 1800^\circ C$ で5時間焼成して製造されていた。

【0005】 しかしながら、上記従来技術におけるガスセパレータは、セパレータ本体が、例えば空気透過率 $1.0\times 10^{-8}(cc/cm/sec(g/cm^2)^{-1})$ 程度の緻密質材料で構成されていたために、耐熱衝撃性が小さく、発電の際の急激な発熱反応、またはヒートサイクル等によって、ひび割れもしくは歪みが生じるという問題があり、実際、約1割程度の確立でひび割れが生じていた。また耐熱衝撃性が小さいことから生産性を向上させることが難しく、コスト高になるという問題もあった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、上記従来技術の問題点を解決し、耐熱衝撃性に優れ、生産性

が向上する。固体電解質型燃料電池のガスセパレータおよびその製造方法ならびにこれを用いた固体電解質型燃料電池を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、本発明者は、セパレータ本体を構成する酸化物材と、その耐熱衝撃性および空気透過率等との関係について鋭意研究した結果、セパレータ本体を多孔質酸化物板と、その表面にコーティングされた緻密質の酸化物膜で構成することにより、ガスシール性を低下させることなく、耐熱衝撃性を向上させることができることを見出し、本発明に到達した。

【0008】すなわち本願で特許請求する発明は、以下のとおりである。

(1) 電気絶縁性の酸化物板からなるセパレータ本体と、該セパレータ本体を貫通して設けられた電気導電性の酸化物および／または金属を含む電子流路とを有し、単セルを多数積層して固体電解質型燃料電池を形成する際に、前記単セル相互間に配置されて各単セルを電気的に接続するとともに、前記単セルへ供給される燃料ガスの流路と酸素含有ガスの流路とを仕切るガスセパレータにおいて、前記セパレータ本体が、多孔質の酸化物板と、該多孔質の酸化物板表面にコーティングされた緻密質の酸化物膜とを有することを特徴とする。固体電解質型燃料電池のガスセパレータ。

【0009】(2) 前記セパレータ本体を構成する多孔質の酸化物板が、マグネシア (MgO) とマグネシアスピネル ($MgAl_2O_4$) を主成分とするものであり、該 MgO と $MgAl_2O_4$ の混合比が重量比で1:9~9:1であることを特徴とする上記(1)に記載の、固体電解質型燃料電池のガスセパレータ。

(3) 前記多孔質の酸化物板にコーティングされた緻密質の酸化物膜が、 SiO_2 と CaO を主成分とするものであり、該 SiO_2 と CaO の混合比がモル比で1:0.5~2であることを特徴とする上記(1)に記載の、固体電解質型燃料電池のガスセパレータ。

(4) 前記多孔質の酸化物板にコーティングされた緻密質の酸化物膜が、 SiO_2 に対してモル比で0~0.2の Al_2O_3 を含有することを特徴とする上記(3)に記載の、固体電解質型燃料電池のガスセパレータ。

(5) 上記(1)~(4)の何れかに記載のガスセパレータを介して単セルを多数積層したことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

【0010】(6) 粉末状のマグネシア (MgO) とマグネシアスピネル ($MgAl_2O_4$) とを混合し、助剤を加えて平板状に成形し、焼成した電気絶縁性のセパレータ本体に、該セパレータ本体の平板状を貫通するように電気導電性の酸化物および／または金属を含む電子流路を設ける。固体電解質型燃料電池のガスセパレータの製造方法において、前記粉末状のマグネシア (MgO)

およびマグネシアスピネル ($MgAl_2O_4$) として、それぞれ粒径 $7.4\mu m$ 以下の粒子と該粒径 $7.4\mu m$ 以下の粒子を含む粒径 $1mm$ 以下の粒子の重量比が1:9~9:1となるように混合したものを用い、該粉末状の MgO と $MgAl_2O_4$ を重量比が1:9~9:1となるように混合し、該混合物に助剤を加えて平板状に成形し、 $1300\sim 1900^\circ C$ で焼成し、得られた焼成体表面に SiO_2 、 CaO および／または Al_2O_3 を含む混合スラリーを塗布し、 $1200\sim 1400^\circ C$ で熱処理して前記焼成体表面に緻密質の酸化物膜を形成してセパレータ本体とし、該セパレータ本体を貫通するように電気導電性の酸化物および／または金属を含む電子流路を設けることを特徴とする。固体電解質型燃料電池のガスセパレータの製造方法。

【0011】(7) 前記混合スラリーにおける SiO_2 、 CaO および Al_2O_3 の混合比を、モル比で1:0.5~2:0~0.2とすることを特徴とする上記(6)に記載の、固体電解質型燃料電池のガスセパレータの製造方法。

【0012】本発明において、セパレータ本体とは、固体電解質型燃料電池の構成部材であるガスセパレータの主要部分をなすもので、電子流路となる電気導電性の酸化物を接合するための貫通孔を有している。

【0013】本発明において、セパレータ本体は、電気絶縁性の多孔質酸化物板と、該多孔質酸化物板の表面をコーティングする緻密質の酸化物膜とを有する。酸化物としては、例えば煉瓦、セラミックス等が挙げられる。多孔質酸化物板の構成材料は、マグネシア (MgO) とマグネシアスピネル (以下、単にスピネルという) ($MgAl_2O_4$) を主成分とするものであることが好ましく、その混合比は、重量比で $MgO:MgAl_2O_4=1:9\sim 9:1$ であり、好ましくは、4:6~6:4である。 MgO に対する $MgAl_2O_4$ の混合比が大きすぎると、線膨張係数が小さくなり、小さすぎると線膨張係数が大きくなる。

【0014】一方、多孔質酸化物板の表面をコーティングする緻密質酸化物膜の構成材料は、 SiO_2 と CaO を主成分とするものであることが好ましく、その混合比は、モル比で $SiO_2:CaO=1:0.5\sim 2$ 、好ましくは、1:1.0~1.5である。 SiO_2 に対する CaO のモル比が多すぎると溶融状態が悪くなってコーティング層の形成が困難となる。一方、 CaO のモル比が少なすぎるとコーティング層にひび割れが生じ易くなる。 SiO_2 と CaO からなる構成材料にはさらに Al_2O_3 を添加することが好ましい。 Al_2O_3 の添加量は、 SiO_2 に対してモル比で0~0.2であり、好ましくは0~0.1である。 Al_2O_3 を添加することにより、融点を下げ、安定な膜を作ることができる。 Al_2O_3 のモル比が多すぎると溶融が不十分となる。

【0015】多孔質の酸化物板は、緻密質の酸化物板に

比べて多少ガスシール性が損なわれるが、耐熱衝撃性、耐ヒートサイクル性が高く、発電時にひび割れ、歪み等を生じることがない。また多孔質の酸化物板は、緻密質の酸化物板を形成する場合に比べて製造が容易で、しかもコストが割安となる。従って、本発明においては、セパレータ本体を、多孔質の酸化物板と、該多孔質酸化物板のガスシール性を確保するためにその表面にコーティングされた緻密質の酸化膜とで形成する。

【0016】本発明において、多孔質酸化物板とは、例えば空気透過率 1.0×10^{-3} (cc cm/sec (g/cm²) cm²) 程度以上の酸化物板をいい、緻密質酸化物膜とは、例えば空気透過率 1.0×10^{-4} (cc cm/sec (g/cm²) cm²) 程度以下の酸化物膜をいう。

【0017】本発明においては、単セルを積層して固体電解質型燃料電池を形成する際、ガスセパレータとして、セパレータ本体が、多孔質の酸化物板と該多孔質酸化物板の表面をコーティングする緻密質酸化物膜とからなるガスセパレータが使用される。これによって、繰り返しのヒートサイクルに対してもひび割れのない、耐熱衝撃性の高い固体電解質型燃料電池となる。

【0018】本発明においては、セパレータ本体の構成材料であるMgOとMgAl₂O₄はそれぞれ、粒径7.4 μm以下の粒子と、該粒径7.4 μm以下の粒子を含む粒径1 mm以下の粒子の重量比が1:9~9:1、好ましくは6:4となるように粉碎、混合される。この粒度条件を満足するMgOとMgAl₂O₄を混合し、助剤を加えてスラリーとし、これを、例えばプレス成形法によって薄板状に成形し、焼成してセパレータ焼成体とする。構成材料を、粒径7.4 μm以下の粒子と、該粒径7.4 μm以下の粒子を含む粒径1 μm以下の粒子との重量比で規定する理由は、構成材料の密度を極力大きくするためであり、その重量比を1:9~9:1とする理由は、焼成後の密度を極力大きくするためである。粉末状のMgOとMgAl₂O₄との混合比は、重量比で1:9~9:1であり、特に4.5:5.5であることが好ましい。成形法は、特に限定されない。また焼成温度は、例えば1300~1900℃、好ましくは1400~1800℃、焼成時間は2~10時間、好ましくは3~5時間であ

ある。このような条件で製造されたセパレータ焼成体は、多孔質なものとなる。得られた多孔質酸化物からなるセパレータ焼成体の表面にSiO₂、CaOおよび/またはAl₂O₃を主成分とするスラリーが塗布され、1200~1400℃、好ましくは1200~1300℃で熱処理される。これによって、前記多孔質酸化物板の表面に緻密質の酸化物膜が形成される。

【0019】本発明において、助剤とは、成形時に接着剤として機能する成形助剤であり、例えば、乳酸アルミバインダ、アルミナセメント等が使用される。

【0020】

【発明の実施の形態】次に、本発明を実施例によってさらに詳細に説明する。

実施例1

粒径7.4 μm以下の粒子と、該7.4 μm以下の粒子を含む粒径1 mm以下の粒子の重量比が6:4となるようにそれぞれ混合したMgOとMgAl₂O₄を、重量比が、MgO:MgAl₂O₄=4.5:5.5となるように混合し、助剤として、乳酸アルミバインダを0.5~2 wt%添加し、プレス成形して板状成形体とし、該板状成形体を1400~1800℃で5時間焼成して多孔質酸化物板からなるセパレータ焼成体とした。

【0021】次に、平均粒径10 μmのSiO₂、平均粒径15 μmのCaOおよび平均粒径2 μmのAl₂O₃をそれぞれモル比で1:1:0.1になるように混合したコーティング用粉末100 gに対し、結合剤としてポリビニルブチラール18 g、可塑剤としてジブチルフタレート16 g、分散剤としてノニオン系界面活性剤2 g、および溶剤としてエタノール150 mlを添加してスラリーとし、該スラリーを上記得られた、セパレータ焼成体の表面にディップコート法によって厚さ50 μm塗布し、70℃で24時間乾燥したのち1200~1300℃で熱処理して緻密質酸化物からなるコーティング層を形成してセパレータ本体とした。

【0022】表1に、コーティング層形成用スラリーの組成割合を示す。

【0023】

【表1】

組 成	量
コーティング粉末(CaO, SiO ₂ , Al ₂ O ₃)	100 (g)
結合剤 (ポリビニルブチラール)	18 (g)
可塑剤 (ジブチルフタレート)	16 (g)
分散剤 (ノニオン系界面活性剤)	2 (g)
溶剤 (エタノール)	150 (ml)

得られたセパレータ本体に、電気導電性の酸化物、例えばLaCrO₃からなる電子流路材、および前記緻密質酸化物膜と同様の組成からなる枠体を嵌合または接合し

てガスセパレータとし、該ガスセパレータについて空気透過率を測定したところ、 2.0×10^{-3} (cc cm/sec (g/cm²) cm²) であった。

【0024】なお、空気透過率の測定は、以下の方法によって行った。

【0025】図1に本実施例で得られたガスセパレータを示す。図1において、平板状のセパレータ本体2の対抗する2組の辺に積層用棒体3およびガス流通用棒体4が接合されるとともに、電子流路材接合用の貫通孔に電子流路材5が接合されている。また、図2は、図1のII-II線矢示方向部分断面図である。図2において、セパレータ本体2は多孔質耐火物膜（以下、多孔質耐火煉瓦層ともいう）6と、該多孔質耐火煉瓦層6の表裏両面にコーティングされた緻密質耐火物膜（以下、緻密質コーティング層ともいう）7で構成されている。

【0026】本実施例によれば、セパレータ本体を多孔質耐火煉瓦層6と、その表面にコーティングされた緻密質コーティング層7とで形成したことにより、発電時またはヒートサイクルを行った場合でもひび割れ等を生じることがなく、耐熱衝撃性が向上する。また、空気透過率を所定値以下に抑えることができるので、ガスセパレータとして十分実用に供することができる。さらに、多孔質耐火煉瓦層6は、緻密質の耐火煉瓦層に比べて生産性がよい上に材料コストも下がるので、従来の緻密質耐火煉瓦層のみからなるガスセパレータ本体に比べて生産コストを約1/20程度に低減することができる。

【0027】実施例2

緻密質コーティング層7における、 SiO_2 に対する CaO および Al_2O_3 のモル比をそれぞれ2および0.2とした以外は、上記実施例1と同様にして同様のガスセパレータを得、得られたガスセパレータについて実施例1と同様にして空気透過率を測定したところ、3.1

$\times 10^{-3} (\text{cc cm/sec (g/cm}^2\text{)} \text{cm}^2)$ であった。

【0028】実施例3

緻密質コーティング層7における、 SiO_2 に対する CaO および Al_2O_3 のモル比をそれぞれ0.5および0.05とした以外は、上記実施例1と同様にして同様のガスセパレータを得、得られたガスセパレータについて実施例1と同様にして空気透過率を測定したところ、 $2.9 \times 10^{-3} (\text{cc cm/sec (g/cm}^2\text{)} \text{cm}^2)$ であった。

【0029】比較例1

緻密質コーティング層7における、 SiO_2 に対する CaO および Al_2O_3 のモル比をそれぞれ2.5および0.25とした以外は、上記実施例1と同様にして同様のガスセパレータを得ようとしたところ、コーティング材が溶融せず、コーティング層を均一に形成することができなかった。

【0030】比較例2

緻密質コーティング層7における、 SiO_2 に対する CaO および Al_2O_3 のモル比をそれぞれ0.4および0.04とした以外は、上記実施例1と同様にして同様のガスセパレータを得たところ、コーティング層にひび割れが発生した。得られたガスセパレータについて実施例1と同様にして空気透過率を測定したところ、 $5.0 \times 10^{-3} (\text{cc cm/sec (g/cm}^2\text{)} \text{cm}^2)$ であった。

【0031】実施例1～3および比較例1、2における緻密質コーティング層の組成および得られたガスセパレータについての空気透過率の測定結果を表2に示した。

【0032】

【表2】

	コーティング材組成 (モル比) $\text{SiO}_2 : \text{CaO} : \text{Al}_2\text{O}_3$	空気透過率*	膜の状態
実施例1	1.0 : 1.0 : 0.1	2.0×10^{-3}	溶融
実施例2	1.0 : 2.0 : 0.2	3.1×10^{-3}	溶融
実施例3	1.0 : 0.5 : 0.05	2.9×10^{-3}	溶融
比較例1	1.0 : 2.5 : 0.25	——	溶融せず
比較例2	1.0 : 0.4 : 0.04	5.0×10^{-3}	割れ有り

* 空気透過率の単位: $(\text{cc cm/sec (g/cm}^2\text{)} \text{cm}^2)$

表2において、実施例1～3のガスセパレータは空気透過率が小さく、コーティング材が良好に溶融し、多孔質耐火煉瓦層6の表面に緻密質コーティング層7が良好に形成されたことが分かる。これに対して緻密質コーティング層7における SiO_2 に対する CaO のモル比を2.5に増大させた比較例1ではコーティング材が溶融

せず、コーティング膜を形成することができなかった。また、 SiO_2 に対する CaO のモル比を0.4とした比較例2はコーティング膜を形成することはできたが、ひび割れが生じ、ガスセパレータとして実用に供することができなかった。

【0033】実施例4

図3は、実施例1で得られたガスセパレータを用いて単セルを多数積層した固体電解質型燃料電池の燃料電池スタックの説明図である。

【0034】図において、両電極面に集電板11が当接された単セル10がガスセパレータ1を介して多数積層されており、前記単セル10は、ガスセパレータ1の電子流路材5によって電気的に直列に接続されている。このような構成において、前記ガスセパレータ1で仕切られる燃料ガス流路および酸素含有ガス流路を経て前記単セル1の燃料側電極膜および空気側電極膜にそれぞれ燃料および酸素が供給され、各単セルにおける電極反応によってエネルギーが発生する。

【0035】本実施例によれば、ガスセパレータ1として、セパレータ本体2が、緻密質コーティング層7で被覆された多孔質耐火煉瓦層6で構成したものをを用いたことにより、発電時、またはヒートサイクルを行った場合にも前記ガスセパレータ1にひび割れ等が生じることはなく、固体電解質型燃料電池全体の耐熱衝撃性が向上する。

【0036】

【発明の効果】本願の請求項1記載の発明によれば、セパレータ本体が、多孔質の酸化物板と、その表面にコーティングされた緻密質の酸化物膜とを有することにより、実用上十分に小さい空気透過率を確保しつつ、耐熱衝撃性、耐ヒートサイクル性に優れたガスセパレータとなる。

【0037】本願の請求項2記載の発明によれば、セパレータ本体を構成する多孔質の酸化物板が、マグネシア(MgO)とスピネル(MgAl₂O₄)を主成分とし、該MgOとMgAl₂O₄の混合比が重量比で1:9~9:1であるものとしたことにより、上記発明の効果に加え、多孔質セラミックスの熱膨張係数を調整して耐熱衝撃性を制御することができる。

【0038】本願の請求項3記載の発明によれば、多孔質の酸化物板の表面にコーティングされた緻密質の酸化物膜を、SiO₂とCaOを主成分とし、該SiO₂とCaOの混合比がモル比で1:0.5~2であるものとしたことにより、上記発明の効果に加え、溶融状態の良好なコーティング層が形成されて空気透過率を十分に小さく保持することができる。

【0039】本願の請求項4記載の発明によれば、多孔質の酸化物板をコーティングする緻密質の酸化物膜の構成材料に、さらにSiO₂に対してモル比で0~0.2のAl₂O₃を含有させたことにより、上記発明の効果に加え、溶点を下げる事が可能となり安定な品質のコーティング膜を作ることができる。

【0040】本願の請求項5記載の発明によれば、上記(1)~(4)の何れかに記載のガスセパレータを介して単セルを多数積層して固体電解質型燃料電池を形成したことにより、耐熱衝撃性の高い固体電解質型燃料電池が得られる。

【0041】本願の請求項6記載の発明によれば、粒径7.4μm以下の粒子と、該粒径7.4μm以下の粒子を含む粒径1mm以下の粒子の重量比が1:9~9:1となるようにそれぞれ混合したMgOとMgAl₂O₄の混合粉末を重量比で1:9~9:1に混合し、該混合物に助剤を加えて板状に成形したのち焼成し、該焼成体表面にSiO₂、CaOおよび/またはAl₂O₃を含む混合スラリーを塗布して1200~1400℃で熱処理することにより、セパレータ本体が、多孔質の酸化物板の表面に緻密質の酸化物膜をコーティングしたものとなり、耐熱衝撃性の高いガスセパレータが得られる。

【0042】本願の請求項7記載の発明によれば、前記コーティング膜形成用の混合スラリーにおけるSiO₂、CaOおよびAl₂O₃の混合比を、モル比で1:0.5~2:0~0.2としたことにより、上記発明の効果に加え、コーティング材が良好に溶融し、実用上十分に小さい空気透過率を有するガスセパレータが得られる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施例におけるガスセパレータを示す説明図。

【図2】図1のII-II線矢示方向の部分断面図。

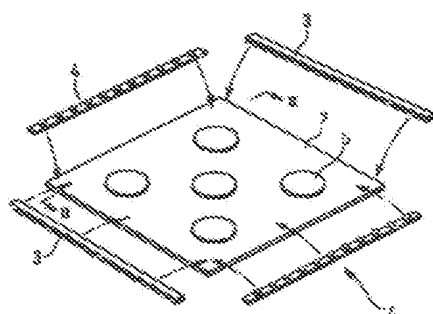
【図3】本発明のガスセパレータを適用した燃料電池スタックの説明図。

【図4】ガスセパレータと単セルの説明図。

【符号の説明】

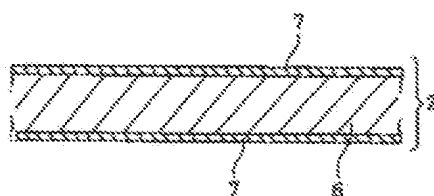
1…ガスセパレータ、2…セパレータ本体、3…積層用枠体、4…ガス流通用枠体、5…電子流路材、6…多孔質耐火煉瓦層、7…緻密質コーティング層、10…単セル、11…集電板。

【図1】



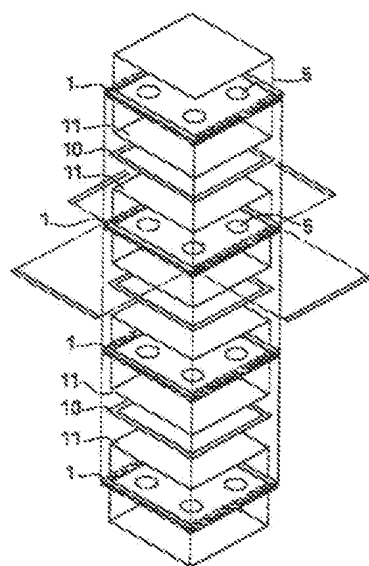
1: ガスセパレータ
2: 角部連結部材
3: 多孔質膜大気取入れ部

【図2】



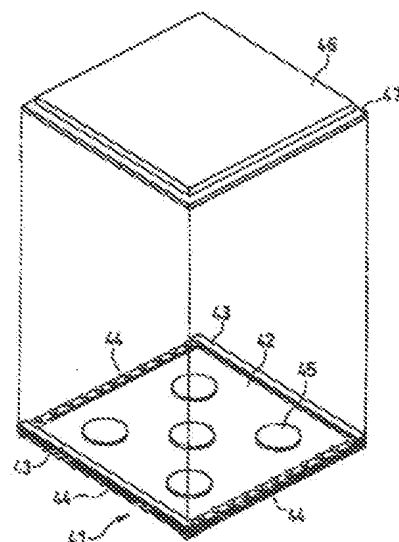
6: 多孔質膜大気取入れ部
7: 多孔質膜コーティング層

【図3】



1: ガスセパレータ
2: 角部連結部材
3: 多孔質膜大気取入れ部

【図4】



44: ガスセパレータ
45: セパレータ本体
46: 多孔質膜大気取入れ部
47: 角部連結部材